

Partial translation of JP-A-09-052776

(11) Publication number: 09-052776

(43) Date of publication: February 25, 1997

5 (21) Application number: 07-242262

(22) Date of filing: August 17, 1995

(71) Applicant: UBE INDUSTRIES, LTD.

(72) Inventor: Toshihiro ISHIKAWA et al.

(54) Title of the Invention: Fiber bonded ceramic and its  
10 production process

-----

(translation of Abstract)

(57) [Abstract]

15 [Object] To provide a fiber bonded ceramic which has high strength and fracture resistance and can maintain excellent dynamic properties in air at 1,000 °C or higher.

[Constitution] The fiber bonded ceramic is composed of inorganic fibers of Si-M(Ti or Zr)-C-O, an inorganic material  
20 which contains Si-O and dispersed MC with 100 nm or less and exists so as to fill interstices between the inorganic fibers, and a carbon layer existing as a boundary layer between the inorganic fibers and the inorganic material, and the fiber bonded ceramic has an inorganic fiber content of at least 80 %  
25 by volume.

(translation of claims 1 and 2 at lines 1 - 35 in the left column of page 1)

[Scope of Patent Claims]

30 [Claim 1] A fiber-bonded ceramic composed of inorganic fibers containing an amorphous substance (a) comprising Si, M, C and O, an assembly (b) of crystalline

ultrafine particles of  $\beta$ -SiC, MC and C and amorphous substances of SiO<sub>2</sub> and MO<sub>2</sub> (M is Ti or Zr), or a mixture (c) of the above amorphous substance(a) and the above assembly (b), and

an inorganic substance containing an amorphous substance (d) comprising Si and O and optionally comprising M, a crystalline substance (e) comprising crystalline SiO<sub>2</sub> and/or MO<sub>2</sub>, or a mixture (f) of the amorphous substance (d) and the crystalline substance (e), and further containing dispersed crystalline ultrafine particles of MC having a particle diameter of 100 nm or less, the inorganic substance existing so as to fill interstices between the inorganic fibers,

which ceramic is characterized in that the content of the inorganic fibers is at least 80 % by volume and that the fiber-bonded ceramic has layers with a thickness of 1 to 200nm comprising amorphous and/or crystalline carbon, as boundary layers between the inorganic fibers and the inorganic substance.

[Claim 2] A process for the production of a fiber-bonded ceramic, which process comprises hot-pressing a laminate material of inorganic fibers in an inert gas under a pressure of from 50 to 1,000 kg/cm<sup>2</sup> at a temperature of from 1,550 to 1,850 °C,

wherein the inorganic fibers have an internal layer which is composed of an inorganic substance containing an amorphous substance (a) comprising Si, M, C and O, an assembly (b) of crystalline ultrafine particles of  $\beta$ -SiC, MC and C and amorphous substances of SiO<sub>2</sub> and MO<sub>2</sub> (M is Ti or Zr), or a mixture (c) of the above amorphous substance(a) and the above assembly (b) and a surface layer which is composed of an inorganic substance containing an amorphous substance (d) comprising Si and O and optionally comprising M, a crystalline substance (e) comprising crystalline SiO<sub>2</sub> and/or MO<sub>2</sub>, or a mixture (f) of the

amorphous substance (d) and the crystalline substance (e),  
and wherein the surface layer has a thickness T  
(unit:  $\mu\text{m}$ ) satisfying  $T = aD$  (in which a is from 0.023 to 0.053  
and D is a diameter (unit:  $\mu\text{m}$ ) of the inorganic fiber).

5

(translation of [0002] to [0005] at line 43 in the left column  
to line 17 in the right column in page 2)

[0002]

[Prior Arts and Problems thereof] JP-A-7-69747 discloses an  
10 inorganic fiber sintered body which is composed of inorganic  
fibers comprising Si, C, Ti or Zr, and O as constituent elements  
and an inorganic substance comprising Si, Ti or Zr and O as  
constituent elements and existing so as to fill interstices  
between the inorganic fibers and has layers with a thickness  
15 of 1 to 200 nm comprising an amorphous carbon and/or a  
crystalline carbon, as boundary layers between the inorganic  
fibers and the inorganic substance.

[0003] Further, the above publication discloses a process  
for the production of an inorganic fiber sintered body, which  
20 comprises sintering a laminate material of inorganic fibers  
having an internal layer comprising Si, C, Ti or Zr, and O as  
constituent elements and a surface layer comprising Si, Ti or  
Zr, and O as constituent elements by stepwise  
temperature-increasing in an inert gas under a pressure of from  
25 50 to 1,000  $\text{kg}/\text{cm}^2$ .

[0004] The inorganic fiber sintered body disclosed in the  
above publication has high fracture energy and excellent  
dynamic properties, while it shows plastic deformation  
behaviors at a high temperature of more than 1,300  $^{\circ}\text{C}$  in some  
30 cases. The above inorganic fiber sintered body is hopeful as  
a structural material and the structural material is required  
not to show plastic deformation behaviors even at a high

temperature.

[0005]        Therefore, it is desired to develop a material which retains the high fracture energy and excellent dynamic properties of the inorganic fiber sintered body disclosed in  
5    the above publication and at the same time does not show plastic deformation behaviors even at an extremely high temperature of more than 1,300 °C.

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平9-52776

(43) 公開日 平成9年(1997)2月25日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

C 0 4 B 35/80

識別記号

庁内整理番号

F I

C 0 4 B 35/80

技術表示箇所

A

審査請求 未請求 請求項の数2 書面 (全 6 頁)

(21) 出願番号 特願平7-242262

(22) 出願日 平成7年(1995)8月17日

(71) 出願人 000000206

宇部興産株式会社

山口県宇部市西本町1丁目12番32号

(72) 発明者 石川 敏弘

山口県宇部市大字小串1978番地の5 宇部  
興産株式会社宇部研究所内

(72) 発明者 梶井 紳二

山口県宇部市大字小串1978番地の5 宇部  
興産株式会社宇部研究所内

(72) 発明者 松永 賢二

山口県宇部市大字小串1978番地の5 宇部  
興産株式会社宇部研究所内

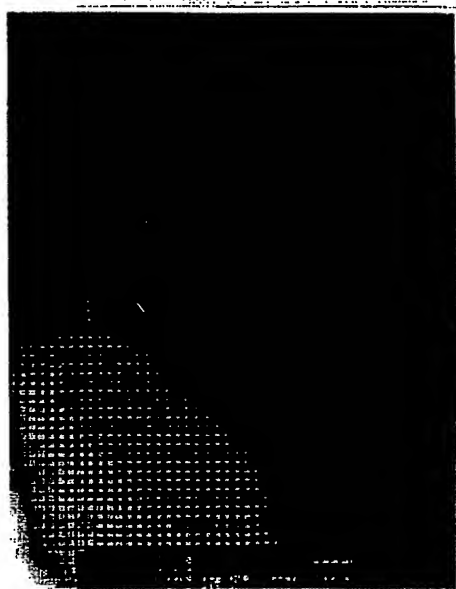
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 繊維結合型セラミックス及びその製法

(57) 【要約】

【目的】 高い強度及び破壊靱性を示し、1000℃以上の空気中も優れた力学的特性を維持する繊維結合型セラミックスを提供する。

【構成】 繊維結合型セラミックスは、をSi-M(Ti又はZr)-C-Oの無機質繊維と、無機質繊維の間隙を充填するように存在する、Si-Oを含有しかつ100nm以下のMCが分散した無機物質とからなり、無機質繊維の含有量が80体積%以上であり、さらに、無機質繊維と無機物質との境界層として炭素層が存在する。



BEST AVAILABLE COPY

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】(a) Si、M、C及びOからなる非晶質物質、(b)  $\beta$ -SiC、MC及びCの結晶質超微粒子と、SiO<sub>2</sub>及びMO<sub>2</sub>の非晶質物質との集合体(MはTi又はZrを示す。)、又は(c)上記(a)の非晶質物質と上記(b)の集合体との混合物を含有する無機質繊維と、この無機質繊維の間隙を充填するように存在する、(d) Si及びO、場合によりMからなる非晶質物質、(e) 結晶質のSiO<sub>2</sub>及び/又はMO<sub>2</sub>からなる結晶質物質、又は(f)上記(d)の非晶質物質と上記(e)の結晶質物質との混合物を含有し、かつ100nm以下の粒径のMCからなる結晶質微粒子が分散した無機物質とからなり、上記無機質繊維の含有量が80体積%以上であり、さらに、上記の無機質繊維と上記の無機物質との境界層として1~200nmの非晶質及び/又は結晶質の炭素からなる層が存在することを特徴とする繊維結合型セラミックス。

【請求項2】内面層と表面層とからなる無機繊維であって、内面層が(a) Si、M、C及びOからなる非晶質物質、(b)  $\beta$ -SiC、MC及びCの結晶質超微粒子と、SiO<sub>2</sub>及びMO<sub>2</sub>の非晶質物質との集合体(MはTi又はZrを示す。)、又は(c)上記(a)の非晶質物質と上記(b)の集合体との混合物を含有する無機質物質で構成され、表面層が、(d) Si及びO、場合によりMからなる非晶質物質、(e) 結晶質のSiO<sub>2</sub>及び/又はMO<sub>2</sub>からなる結晶質物質、又は(f)上記(d)の非晶質物質と上記(e)の結晶質物質との混合物を含有する無機質物質で構成され、かつ、表面層の厚さT(単位 $\mu$ m)が $T=aD$ (ここで、aは0.023~0.053の範囲内の数値であり、Dは無機繊維の直径(単位 $\mu$ m)である。)を満足する無機繊維の積層物を、不活性ガス中、50~1000kg/cm<sup>2</sup>の圧力下に1550~1850℃の範囲の温度でホットプレスすることを特徴とする繊維結合型セラミックスの製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は高い強度及びきわめて高い破壊靱性を有し、さらに1000℃以上の空気中でも優れた力学的特性を発現する繊維結合型セラミックス及びその製法に関する。

## 【0002】

【従来の技術及びその課題】特開平7-69747号公報には、Si、C、Ti又はZr、及びOを構成元素とする無機質繊維と、この無機質繊維の間隙を充填するように存在する、SiTi又はZr、及びOを構成元素とする無機物質とから構成され、無機質繊維と無機物質との境界層として1~200nmの非晶質及び/又は結晶質の炭素からなる層が存在する無機繊維焼結体が開示されている。

【0003】また、上記公報には、Si、C、Ti又はZr、及びOを構成元素とする内面層と、Si、Ti又はZr、及びOを構成元素とする表面層とからなる無機繊維の積層物を、不活性ガス中、50~1000kg/cm<sup>2</sup>の圧力下に、段階的に昇温して加熱焼結する無機繊維焼結体の製法が開示されている。

【0004】上記公報に記載の無機繊維焼結体は、高い破壊エネルギー及び優れた力学的特性を示す一方で、1300℃を超える高温下では塑性変形的な挙動を示すことがある。上記の無機繊維焼結体は構造材料として有望なものであり、構造材料には高温下でも塑性変形的な挙動を示さないことが望まれる。

【0005】従って、上記公報の開示されている無機繊維焼結体における高い破壊エネルギー及び優れた力学的特性を保持しつつ、同時に、1300℃を超えるようなきわめて高い温度においても塑性変形的な挙動を示さない材料の開発が望まれる。

## 【0006】

【課題を解決する技術的手段】本発明の目的は、上記要望を満足する繊維結合型セラミックス及びその製法を提供することにある。

【0007】本発明によれば、(a) Si、M、C及びOからなる非晶質物質、(b)  $\beta$ -SiC、MC及びCの結晶質超微粒子と、SiO<sub>2</sub>及びMO<sub>2</sub>の非晶質物質との集合体(MはTi又はZrを示す。)、又は(c)上記(a)の非晶質物質と上記(b)の集合体との混合物から構成される無機質繊維と、この無機質繊維の間隙を充填するように存在する、(d) Si及びO、場合によりMからなる非晶質物質、(e) 結晶質のSiO<sub>2</sub>及び/又はMO<sub>2</sub>からなる結晶質物質、又は(f)上記(d)の非晶質物質と上記(e)の結晶質物質との混合物から構成され、かつ100nm以下の粒径のMCからなる結晶質微粒子が分散した無機物質とから構成され、さらに、上記の無機質繊維と上記の無機物質との境界層として1~200nmの非晶質及び/又は結晶質の炭素からなる層が存在することを特徴とする繊維結合型セラミックスが提供される。

【0008】さらに、本発明によれば、内面層と表面層とからなる無機繊維であって、内面層が(a) Si、M、C及びOからなる非晶質物質、(b)  $\beta$ -SiC、MC及びCの結晶質超微粒子と、SiO<sub>2</sub>及びMO<sub>2</sub>の非晶質物質との集合体(MはTi又はZrを示す。)、又は(c)上記(a)の非晶質物質と上記(b)の集合体との混合物から構成される無機質物質で構成され、表面層が、(d) Si及びO、場合によりMからなる非晶質物質、(e) 結晶質のSiO<sub>2</sub>及び/又はMO<sub>2</sub>からなる結晶質物質、又は(f)上記(d)の非晶質物質と上記(e)の結晶質物質との混合物からなる無機質物質で構成され、かつ、表面層の厚さT(単位 $\mu$ m)が $T=aD$ (ここで、aは0.023~0.053の範囲内の

数値であり、Dは無機繊維の直径(単位 $\mu\text{m}$ )である。)を満足する無機繊維の積層物を、不活性ガス中、 $50\sim 1000\text{kg}/\text{cm}^2$ の圧力下に $1550\sim 1850^\circ\text{C}$ の範囲の温度でホットプレスすることを特徴とする繊維結合型セラミックスの製造方法が提供される。

【0009】まず、本発明の繊維結合型セラミックスについて説明する。無機質繊維は上記の(a)、(b)又は(c)で構成される。(b)における $\beta\text{-SiC}$ とMCとはそれらの固溶体として存在することもでき、またMCは炭素欠損状態である $\text{MC}_{1-x}$ 、(xは0以上で1未満の数である。)として存在することもできる。無機質繊維を構成する各元素の割合は、通常、Si:30~60重量%、M:0.5~35重量%、好ましくは1~10重量%、C:25~40重量%、O:0.01~30重量%である。無機質繊維の相当直径は一般に5~20 $\mu\text{m}$ である。

【0010】無機質繊維は、本発明の繊維結合型セラミックス中に、80体積%以上、好ましくは85~91体積%存在する。それぞれの無機質繊維の表面には、非晶質及び結晶質の炭素が、1~200 $\mu\text{m}$ の範囲の境界層として層状に偏析している。そして、この無機質繊維の間隙を充填するように、上記の(d)、(e)又は(f)の無機質物質が存在している。また、場所によっては、無機質繊維と無機質物質とが、前記の炭素を境界層として相互に接触していてもよい。

【0011】本発明の繊維結合型セラミックスにおいて重要なことは、無機質繊維が円柱形最密構造にきわめて近い状態で充填されるに十分な量で存在していること、それぞれの無機質繊維の間隙には100nm以下のMCからなる結晶質微粒子が分散した $\text{SiO}_2$ を主体とする酸化物が充填されていること、及び無機質繊維の表面には1~200 $\mu\text{m}$ の範囲の非晶質及び/又は結晶質の炭素が存在していることである。前述した特開平7-69747号公報には、本発明の繊維結合型セラミックスの特徴である、上記の(d)~(f)の酸化物中にMCの超微粒子が存在することについての記載がないことが理解される。

【0012】上記の無機質繊維と酸化物との境界に存在する炭素層及び酸化物中のMCは、後述する製法におけるホットプレスの過程で生成するが、これらの生成機構について説明する。本発明の製法においては、前記

(d)~(f)の酸化物を有する無機繊維が使用されるが、ホットプレスの過程で無機繊維内部から移動してきた炭素が、酸化物に含有されているMと結合することによりMCが生成すると同時に、内面層の回りに偏析することによって炭素層が生成する。

【0013】本発明の繊維結合型セラミックスにおける無機物質中に存在するMCは結晶径が100nm以下と微細であるため、無機物質の分散強化に重要な役割を果たしており、無機物質内部に進展してくる亀裂に伴った

転位を抑制して破壊に対する抵抗力を増大する作用を有する。また、上記の炭素層は、化学気相蒸着法又は化学気相含浸法によって形成される炭素層とは異なっている。この炭素層は無機質繊維の内部に向かって濃度が減少する傾斜した組成分布を有しており、繊維結合型セラミックスが破壊する際の滑り層として作用し、直線的な亀裂の進行を阻止する作用を有する。

【0014】繊維結合型セラミックスにおける無機物質を構成する各元素の割合は、通常、Si:20~65重量%、M:0.3~40重量%、好ましくは1~15重量%、O:30~55重量%であり、場合によっては5重量%以下の炭素を含むことがある。

【0015】つきに本発明の繊維結合型セラミックスの製法について説明する。本発明で原料として使用される無機繊維は、例えば特開昭62-289641号公報に記載の方法に従って、上記の(a)、(b)及び(c)から構成される無機繊維を、酸化性雰囲気下に500~1600 $^\circ\text{C}$ の範囲の温度で加熱することによって調製することができる。この無機繊維(M:Ti)は宇部興産株式会社からチラノ繊維(登録商標)として市販されている。無機繊維の形態については特別の制限はなく、連続繊維、連続繊維を切断したチョップ状短繊維、あるいは連続繊維を一方向に引き揃えたシート状物又は織物であることができる。

【0016】上記の酸化性雰囲気での加熱処理によって無機繊維の表面に形成される前記の(d)、(e)又は(f)からなる無機質物質の表面層の厚さT( $\mu\text{m}$ )が、 $T=aD$ (ここで、aは0.023~0.053の範囲内の数値であり、Dは無機繊維の直径(単位 $\mu\text{m}$ )である。)を満足するように、加熱処理条件を選択することが必要である。表面層の厚さを上記範囲に厳密に制御することにより、無機繊維の含有率が80体積%以上の繊維結合型セラミックスを調製することが可能になる。

【0017】aの値が下限より小さいと、無機繊維表面に存在する表面層は、最密充填された無機質繊維の間隙を完全に充填するには不十分であり、結果として、最終製品である繊維結合型セラミックスにおける無機質繊維の間隙には欠陥としての空隙が残存することになり、最終製品の力学的特性に悪影響を及ぼす。aの値が0.053より大きいと、相対的に無機質繊維間隙に存在する無機物質の体積%が多くなって無機質繊維の体積含有率の低下をもたらす。結果として、無機質繊維の最密充填から遠のくために、最終製品の繊維結合型セラミックスの高温下でのずり変形が起こりやすくなり、最終製品が高温下で好ましくない塑性変形的な挙動を示すようになる。

【0018】前記の酸化性雰囲気の種類としては、空気、純酸素、オゾン、水蒸気、炭酸ガスが挙げられる。選択する酸化性雰囲気の種類により原料無機繊維の酸化

10

20

30

40

50

速度は異なるが、いずれの雰囲気においても、上記したように、表面層の厚さを制限を満足する酸化時間内で処理を行うことが重要である。

【0019】本発明においては、上記の無機繊維からなる積層物を作成し、ついで所望の形状に成形した後に、不活性ガス中でホットプレスすることにより、最終製品である繊維結合型セラミックスが得られる。ホットプレスする際の圧力は $50 \sim 1000 \text{ kg/cm}^2$ であり、温度は $1550 \sim 1850^\circ\text{C}$ の範囲である。

【0020】Si、M及びOを含有する無機繊維の表面層は $1550 \sim 1600^\circ\text{C}$ の範囲の温度で液相を形成するが、無機繊維の内部から出てくる炭素を液相中に存在するMと効果的に反応させてMCを生成させるために、少なくとも $1550^\circ\text{C}$ 以上のホットプレス温度が必要である。ホットプレス温度が $1850^\circ\text{C}$ より高くなると、上記の液相の粘性がきわめて低くなり、生成したMCの移動度が大きくなってMC同士の衝突頻度が増大して、MCの異常粒成長が起こると共に、MCが無機質繊維と無機物質との境界部に偏析し、粒子分散機能を果たせない状態になる。

【0021】

【実施例】以下に実施例及び比較例を示す。以下において、最終製品の力学的特性はつぎのようにして測定した。

層間剪断強度

幅6mm、高さ3mm、長さ21mmの一方方向強化材を用い、スパン間距離10mmで、JIS K7057に準じて測定した。

室温4点曲げ強度

島津製オートグラフ(DSS-500)を用いて測定した。試験片は、幅4mm、高さ3mm、長さ40mmの一方方向強化材を用い、上部支点間距離10mm、下部支点間距離30mmで行った。

準静的破壊エネルギー

JIS R1607に準じて、シェブロンノッチ試験片を用いた3点曲げ試験により測定した。なお、支点間距離は30プラス・マイナス0.5mmとした。

【0022】実施例1

繊維径 $10 \mu\text{m}$ のチラノ繊維(登録商標:宇部興産株式会社製)を $1100^\circ\text{C}$ の空气中で17時間加熱処理して原料の無機繊維を得た。繊維表面には $a = 0.027$ に相当する平均約 $270 \text{ nm}$ の均一な表面層が形成されていた。この無機繊維を一方方向に引き揃えた厚さ $150 \mu\text{m}$ のシート状物150枚を積層した後、 $90 \times 90 \text{ mm}$ 角に切断し、ホットプレスのカーボンダイス中にセットし、アルゴン気流下に $500 \text{ kg/cm}^2$ の圧力下、 $1750^\circ\text{C}$ まで昇温し、同温度に1時間保持して繊維結合型セラミックスを得た。

【0023】得られた繊維結合型セラミックスの無機質繊維の含有率は89体積%であった。無機質繊維の間隙

に存在する無機物質を透過型電子顕微鏡、制限視野電子線回折装置及びエネルギー分散型X線分析装置で観察した結果、無機物質中には粒径 $100 \text{ nm}$ 以下のTiC粒子の分散が認められた。また、無機質繊維と無機物質との界面には薄い境界炭素層の生成が認められた。図1は上記の透過型電子顕微鏡像であり、上述のTiCの分散状態並びに境界炭素層の生成状態が分かる。

【0024】この繊維結合型セラミックスの層間剪断強度は約 $100 \text{ MPa}$ 、室温4点曲げ強度は $780 \text{ MPa}$ 、準静的破壊エネルギーは約 $8800 \text{ J/m}^2$ であった。準静的破壊エネルギーの値は炭素繊維で強化された炭素複合材料(C/Cコンポジット)の値に匹敵し、また、層間剪断強度及び室温4点曲げ強度は、いずれも、C/Cコンポジットのそれらを大幅に上回っている。この繊維結合型セラミックスの $1400^\circ\text{C}$ の空气中における4点曲げ試験の測定結果を図2に示す。図2から、この繊維結合型セラミックスは $1400^\circ\text{C}$ の空气中においても塑性変形的な挙動を示しておらず、室温強度を保持していることが分かる。

20 【0025】比較例1

繊維径 $10 \mu\text{m}$ のチラノ繊維(登録商標:宇部興産株式会社製)を $1150^\circ\text{C}$ の空气中で23時間加熱処理して原料の無機繊維を得た。繊維表面には $a = 0.072$ に相当する平均約 $720 \text{ nm}$ の均一な表面層が形成されていた。この無機繊維を使用した以外は実施例1におけると同様にして、繊維結合型セラミックスを得た。

【0026】この繊維結合型セラミックスの無機質繊維の含有率は72体積%と低かった。但し、実施例1で得られたものと同様に、無機質繊維の間隙に存在する無機物質中には粒径 $100 \text{ nm}$ 以下のTiC粒子の分散が認められ、無機質繊維と無機物質との界面には薄い均一な境界炭素層の生成が認められた。

【0027】この繊維結合型セラミックスの室温4点曲げ強度は $720 \text{ MPa}$ であり、準静的破壊エネルギーも約 $830 \text{ J/m}^2$ と高かったが、 $1400^\circ\text{C}$ における4点曲げ試験の測定結果は、図3に示すように、塑性変形的な挙動を示し、強度も低下していた。

【0028】比較例2

ホットプレス温度を $1900^\circ\text{C}$ に変更した以外は実施例1を繰り返して、繊維結合型セラミックスを得た。得られた繊維結合型セラミックスの室温4点曲げ強度を準静的破壊エネルギーは、それぞれ、 $765 \text{ MPa}$ 及び $8720 \text{ J/m}^2$ と良好であった。しかし、透過型電子顕微鏡像観察の結果、無機質繊維間の無機物質中に存在するTiC結晶は、食い合いによる異常粒成長を起こしており、また、無機質繊維近傍に存在していることから、粒子分散の効果を示さず、層間剪断強度は $40 \text{ MPa}$ 程度であった。

【図面の簡単な説明】

【図1】図1は、実施例1で得られた繊維結合型セラミ



ックスの粒子構造を示す図面に代わる透過電子顕微鏡写真である。

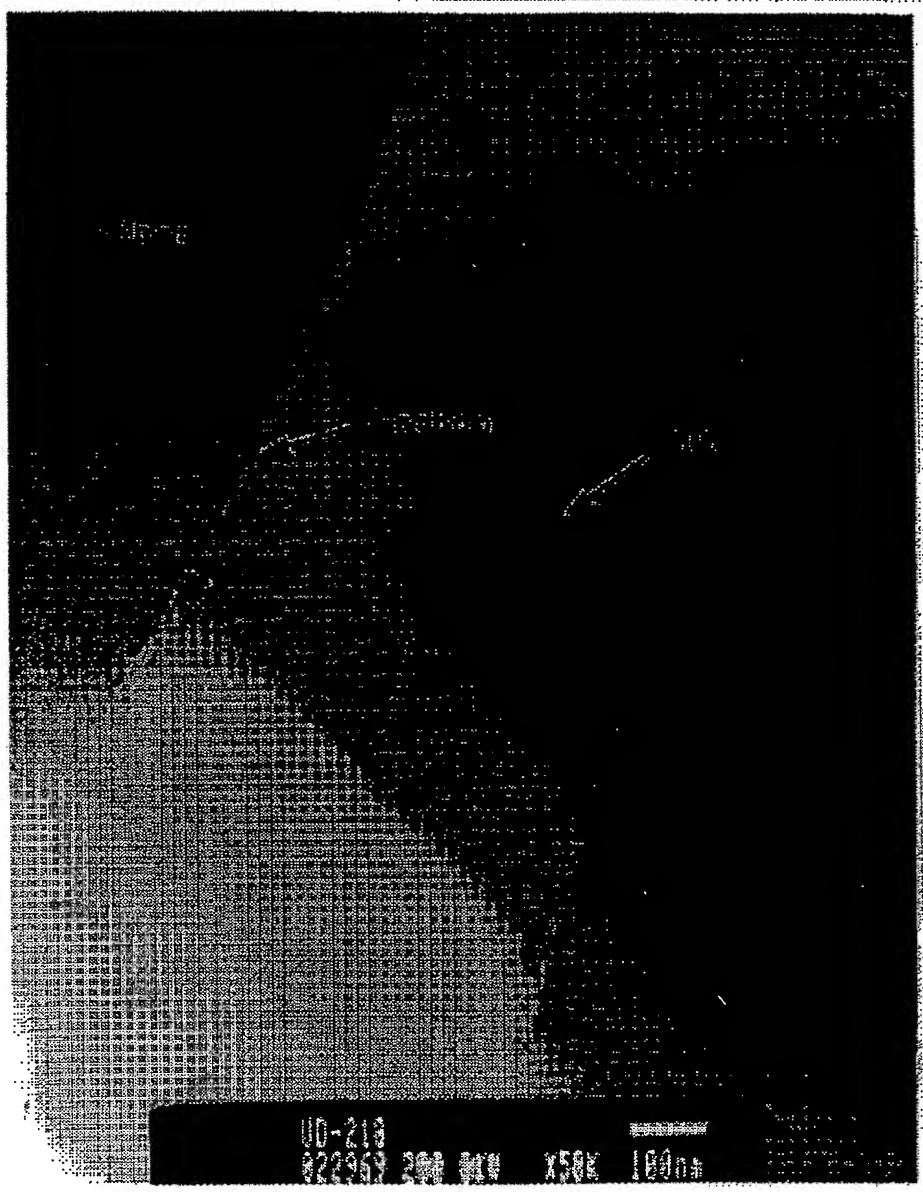
【図2】図2は、実施例1で得られた繊維結合型セラミックスの1400℃における4点曲げ試験結果を示す図\*

\*である。

【図3】図3は、比較例1で得られた繊維結合型セラミックスの1400℃における4点曲げ試験結果を示す図である。

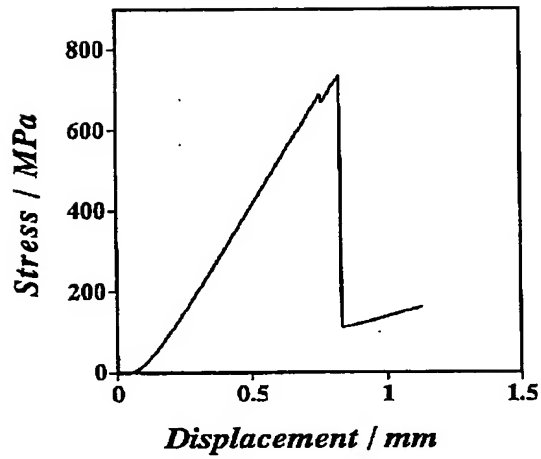
【図1】

図面代用等

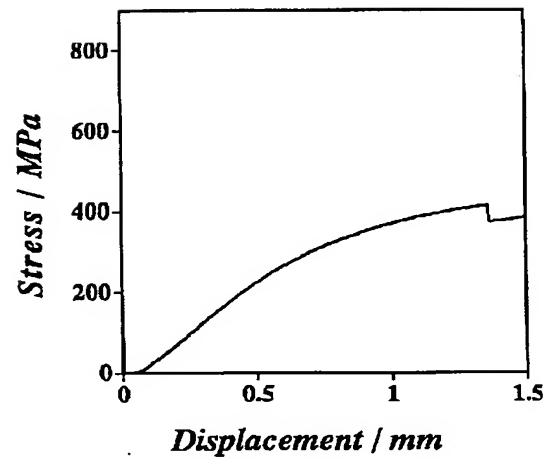


BEST AVAILABLE COPY

【図2】



【図3】



フロントページの続き

(72)発明者 布上 俊彦  
 山口県宇部市大字小串1978番地の5 宇部  
 興産株式会社宇部研究所内

(72)発明者 神徳 泰彦  
 山口県宇部市大字小串1978番地の5 宇部  
 興産株式会社宇部研究所内